

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成20年8月21日(2008.8.21)

【公表番号】特表2008-505237(P2008-505237A)

【公表日】平成20年2月21日(2008.2.21)

【年通号数】公開・登録公報2008-007

【出願番号】特願2007-519710(P2007-519710)

【国際特許分類】

C 0 8 L 9/00 (2006.01)

C 0 8 L 7/00 (2006.01)

C 0 8 K 9/02 (2006.01)

C 0 8 K 5/54 (2006.01)

B 6 0 C 1/00 (2006.01)

【F I】

C 0 8 L 9/00

C 0 8 L 7/00

C 0 8 K 9/02

C 0 8 K 5/54

B 6 0 C 1/00 A

【誤訳訂正書】

【提出日】平成20年7月7日(2008.7.7)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくともジエンエラストマー、補強充填剤、及びカ^ップリング剤をベースとするゴム組成物であって、

前記充填剤が、シリカで覆われた合成金属水酸化物を含み、該水酸化物の金属が、Al、Fe、Mg、及びこれらの金属の混合物から成る群の中から選択される、

ことを特徴とする組成物。

【請求項 2】

前記ジエンエラストマーが、ポリブタジエン、合成ポリイソプレン、天然ゴム、ブタジエン／スチレン・コポリマー、ブタジエン／イソプレン・コポリマー、イソプレン／スチレン・コポリマー、ブタジエン／スチレン／イソプレン・コポリマー、及びこれらのエラストマーの混合物から成る群の中から選択される、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 3】

前記カ^ップリング剤が、少なくとも二官能性であるシラン又はポリシロキサンである、請求項 1 又は請求項 2 に記載の組成物。

【請求項 4】

前記金属水酸化物のシリカの量（質量％）が、前記覆われた水酸化物の総質量の 5％～50％を表す、請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 5】

組成物中の金属酸化物の量が、50 phr よりも多い、請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 6】

前記金属水酸化物が、1次粒子の凝集体（又は2次粒子）を含み、該凝集体が、2よりも大きなアスペクト比（ $F_1 = L_1 / E_1$ ）を有する異方形態である（該凝集体の数により、 L_1 は平均長さ、 E_1 は平均厚みを表す）、請求項1～5のいずれか1項に記載の組成物。

【請求項7】

少なくとも1つのジエンエラストマー、少なくとも補強充填剤及びカップリング剤が組み込まれている、タイヤの製造のために使用可能で加硫速度が改善したジエンゴム組成物を得る方法であって、

前記充填剤が、シリカで覆われた合成金属水酸化物を含み、該水酸化物の金属が、Al、Fe、Mg、及びこれらの金属の混合物から成る群から選択され、

混合物全体が、110℃～190℃の最高温度に達するまで1つ又はそれよりも多くの工程で熱機械的に練られる、

ことを特徴とする方法。

【請求項8】

請求項1～6のいずれか1項に記載のゴム組成物を含むタイヤ。

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0003

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0003】

不十分な耐摩耗性のこの問題に対する1つの有効なソリューションは、ここ10年間におけるタイヤのための従来のカーボンブラックを置換することができることを証明した真の補強無機充填剤、特に「HDS」（「高分散性シリカ」の意味）と呼ばれる高分散性シリカを含む新しいゴム組成物の開発によって見出されている。

しかし、HDシリカをベースとする組成物は、カーボンブラックで満たされた従来の組成物と比較して、原則として2～3倍遅い非常に実質的に遅い加硫速度を有するという公知の欠点を有する。結果的に起こる長い硬化時間は、このような組成物をベースとするタイヤ又はタイヤのためのトレッドの工業的工程に悪影響を与えることが公知である。

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0005

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0005】

従って、本発明の第1の主題は、少なくともジエンエラストマー、補強充填剤、及びカップリング剤をベースとするゴム組成物であって、この充填剤が、シリカで覆われた少なくとも合成金属水酸化物を含み、水酸化物の金属が、Al、Fe、Mg、及びこれらの金属の混合物から成る群から選択されることを特徴とするゴム組成物に関する。

この金属水酸化物は、好ましくは、ある一定の用途に対して有利である異方性特性を本発明の組成物に付与することができる異方形態の凝集体（又は2次粒子）で形成される。

【誤訳訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0006

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0006】

本発明の別の主題は、ジエンゴム組成物中の上述のような補強金属水酸化物の補強充填剤としての使用である。

本発明の主題はまた、少なくとも1つのジエンエラストマー、少なくとも補強無機充填

剤と補強無機充填剤及びエラストマーの間の結合をもたらすカップリング剤が組み込まれているタイヤの製造のために使用可能な加硫速度を改善したゴム組成物を得る方法であり、本方法は、この無機充填剤が、「補強」金属水酸化物（すなわち、全ての上述の特徴を有するもの）を含むこと、及び混合物全体が、 110°C ～ 190°C の最高温度に達するまで1つ又はそれよりも多くの工程で熱機械的に練られることを特徴とする。

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0026

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0026】

II. 本発明の実施の条件

本発明によるゴム組成物は、以下の成分をベースとする：すなわち、(i)（少なくとも1つの）ジエンエラストマー、(ii)（少なくとも1つの）補強充填剤、及び(iii) この充填剤とこのジエンエラストマーの間の結合をもたらす（少なくとも1つの）カップリング剤であり、この充填剤は、以下に詳細に説明するように補強金属水酸化物を含む。

勿論、表現「ベースとする組成物」は、用いられる異なる基本成分の反応の混合物及び／又は生成物を含む組成物を意味するように理解されるものとし、これらの成分の一部は、組成物の製造の様々な工程中に又は以後の組成物の硬化中に、少なくとも部分的に互いに反応することができ及び／又は実際に反応することを意図している。

本発明の説明では、明示的に別段の定めをした場合を除き、示した全ての百分率（％）は質量％である。

【誤訳訂正6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0030

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0030】

コポリマーは、ジエン単位の質量で99％～20％及びビニル芳香族単位の質量で1％～80％までを含有することができる。エラストマーは、用いる重合条件、特に用いる変性剤及び／又はランダム化剤の有無及び変性剤及び／又はランダム化剤の量に応じてあらゆる微細構造を有することができる。エラストマーは、例えば、ブロック、ランダム、配列、又はマイクロ配列エラストマーとすることができ、分散状態又は溶液中で調製することができ、これらは、カップリング及び／又はスターリング又は官能化剤で連結及び／又はスターリングされるか又は代替的に官能化することができる。

【誤訳訂正7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0046

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0046】

「補強無機充填剤」は、その色及びその起源（天然又は合成）に関わらず、ここでは無機又は金属充填剤を意味すると理解され、カーボンブラックと異なり「白色」充填剤、「透明」充填剤、又は「非黒色」充填剤とも呼ばれ、この無機充填剤は、そのままで中間カップリング剤以外のあらゆる手段なしにタイヤの製造を意図したゴム組成物を補強することができ、言い換えると、従来のタイヤ等級カーボンブラックをその補強機能において置換することができる。

【誤訳訂正8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】 0 0 5 1

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 1 】

I I - 3 . カップリング剤

補強無機充填剤の場合は「結合剤」とも呼ばれるカップリング剤を用いる必要があることは、当業者には公知であり、このカップリング剤の機能は、エラストマー基質内のこの無機充填剤の分散性を促進しながら、無機充填剤とエラストマーの間に結合又は「カップリング」をもたらすことである。

補強金属水酸化物はまた、本発明によるゴム組成物内の充填剤を補強するその機能を実施するために、このようなカップリング剤の使用を必要とする。

【誤訳訂正 9】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 5 2

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 2 】

「カップリング剤」は、より正確には、問題の充填剤とエラストマーの間に十分な化学的及び／又は物理的接続を確立することができる作用物質を意味するように理解され、少なくとも二官能性を有するこのようなカップリング剤は、例えば、簡易一般式「Y - T - X」を有し、式中：

－Yは、物理的及び／又は化学的に無機充填剤と結合することができる官能基（「Y」官能性）を表し、このような結合は、例えば、カップリング剤のシリコン原子と無機充填剤の表面水酸（OH）基の間に確立することができ；

－Xは、例えば、硫黄原子を用いて物理的及び／又は化学的にエラストマーと結合することができる官能基（「X」官能性）を表し；

－Tは、Y及びXに連結することを可能にする基を表す。

【誤訳訂正 1 0】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 5 3

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 3 】

カップリング剤は、公知の方法で充填剤に対して活性であるY官能性を含むことができるが、エラストマーに対して活性であるX官能性を欠いている問題の充填剤を覆うための簡単な作用物質と特に混同してはならない。

様々な有効性のこのようなカップリング剤は、非常に多くの文献に説明されており、当業者には公知である。実際に、シリカのような補強無機充填剤とジエンエラストマーの間に有効結合又はカップリングを保証する可能な例えばオルガノシラン、特に硫化アルコキシシラン、又は少なくとも二官能性を有する（上述のX及びY官能性を有する）ポリオルガノシランのようなあらゆるカップリング剤を使用することができる。

【誤訳訂正 1 1】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 5 4

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 4 】

特に、シリカ／エラストマーカップリング剤は、多数の文献に説明されており、最も公知のものは、硫化アルコキシシランのような二官能性アルコキシシランである。特に、例えば、特許出願又は特許US - A - 3, 8 4 2, 1 1 1、US - A - 3, 8 7 3, 4 8 9

、US-A-3, 978, 103、US-A-3, 997, 581、US-A-4, 002, 594、US-A-4, 072, 701、US-A-4, 129, 585、又はより最近の文献US-A-5, 580, 919、US-A-5, 583, 245、US-A-5, 650, 457、US-A-5, 663, 358、US-A-5, 663, 395、US-A-5, 663, 396、US-A-5, 674、932、US-A-5, 675, 014、US-A-5, 684, 171、US-A-5, 684, 172、US-A-5, 696, 197、US-A-5, 708, 053、US-A-5, 892, 085、WO02/083782、又はこのような公知の化合物を詳細に説明しているものに説明されているもののような、その固有の構造に応じて「対称性」又は「非対称性」と呼ばれる硫化アルコキシシランが用いられる。

【誤訳訂正12】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0057

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0057】

TESPDは、例えば、「Si75」（質量で75%の二硫化物及び多硫化物の混合物の形態で）という名称でDegussaにより、又は「Silquest A1589」という名称でWitcoにより市販されている。TESPTは、例えば、「Si69」（又は、質量で50%がカーボンブラックで支持される時は「X50S」）という名称でDegussaにより、又は「Silquest A1289」という名称でOsisスペシャルティにより市販されている（両方の場合に、4に近い平均値を有する多硫化物の市販の混合物）。

好ましいカ₂ップリング剤として、特許出願WO02/083782に説明されているように、ビスー（モノ（C₁-C₄）アルコキシルージ（C₁-C₄）アルキルシリルプロピル）、特に、ビスーモノメトキシジメチルシリルプロピル四硫化物の多硫化物（特に、二硫化物、三硫化物、又は四硫化物）が同様に言及されることになる。

上述の多硫化物アルコキシシラン以外のカ₂ップリング剤の例として、特に、例えば、特許出願WO99/02602又はWO01/96442に説明されているような二官能性ポリオルガノシロキサン、又は特許出願WO02/30939及びWO02/31041に説明されているようなヒドロキシシラン多硫化物について言及されることになる。

【誤訳訂正13】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0058

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0058】

当業者は、意図する用途、用いるエラストマーの性質、及び補強金属水酸化物の量に従って、補足的補強充填剤として用いるあらゆる他の無機充填剤によって適用可能な場合に追加される本発明の組成物中のカ₂ップリング剤の含有量を調節することができることになる。

ジエンエラストマーの質量まで低減されたカ₂ップリング剤の量は、好ましくは、0.1 phr～15 phr、より好ましくは、0.5 phr～10 phrである。

【誤訳訂正14】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0059

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0059】

用いるカ₂ップリング剤は、本発明の組成物のジエンエラストマー上に事前に移植するこ

とができ（「X」官能性を通じて）、このようにして官能化又は「事前連結」されたエラストマーは、次に補強金属水酸化物のための自由「Y」官能性を含む。カ^ップリング剤はまた、補強金属水酸化物に事前に移植することができ（「Y」官能性を通じて）、このようにして「事前連結」された充填剤は、次に自由「X」官能性を用いてジエンエラストマーに結合することができる。しかし、特に未硬化状態での組成物のより良好な加工性の理由で、自由（すなわち、非移植）状態又は補強金属水酸化物に移植されたカ^ップリング剤を用いることが好ましい。

【誤訳訂正 15】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0060

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0060】

I I-4. 様々な添加剤

本発明による組成物は、既に説明した化合物に加えて、例えば、可塑剤又は本質的に芳香族又は非芳香族に関わらずエキステンダー油、特に僅かに芳香性又は非芳香性である油（例えば、ナフテン又はパラフィン油、M E S 又は T D A E 油）及び／又は高 T g（好ましくは 30℃ よりも高い）炭化水素可塑性樹脂、色素、抗酸化剤型の保護剤、オゾン劣化防止剤、抗疲労剤、カ^ップリング活性剤、メチレン受容体及び供与体、例えば、W O O 2 / 1 0 2 6 9 に説明されているようなビスマレイミド又は他の補強樹脂、硫黄又は硫黄及び／又は過氧化物供与体のいずれかをベースとする架橋システム、加硫促進剤、加硫活性剤、金属又は織物に対するゴムの接着促進システム、例えば、ヘキサチオスルホン酸ナトリウム、又は N, N' - m - フェニレン - ビスシトラコンイミドのような抗復帰剤、その他のような自動車のための接地システム、特にタイヤの製造を意図したジエンゴム組成物に通常用いる添加剤を含有することができる。当業者は、彼の特定の要件に従って組成物の処方を調節することができることになる。

【誤訳訂正 16】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0061

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0061】

本発明によるゴム組成物はまた、上述のカ^ップリング剤に加えて、ゴム基質内の充填剤の分散性の改良及び組成物の粘性の減少の結果、補強金属水酸化物を覆うための作用物質（例えば、単一 Y 官能性を含む）、又はより一般的に未硬化状態でこれらのゴム組成物の加工性を改良する傾向がある加工助剤を含有することができ、例えば、0.5 phr ~ 3 phr の好ましい量で用いるこれらの作用物質は、例えば、アルキルアルコキシシラン（特に、例えば、「D y n a s y l a n O c t e o」という名称で D e g u s s a - H u l l s によって市販されている 1-オクチルトリエトキシシラン、又は「S i 2 1 6」という名称で D e g u s s a - H u l l s によって市販されている 1-ヘキサデシルトリエトキシシランのようなアルキルトリエトキシシラン）、ポリオール、ポリエーテル（例えば、ポリエチレングリコール）、1級、2級、又は3級アミン（例えば、トリアルカノールアミン）、例えば、 α 、 ω -ジヒドロキシ-ポリオルガノシロキサン（特に、 α 、 ω -ジヒドロキシ-ポリジメチルシロキサン）のような水酸化又は加水分解性ポリオルガノシロキサンである。

【誤訳訂正 17】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0063

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0063】

本発明による製造工程は、少なくとも補強充填剤及びカップリング剤が第1のいわゆる非生産相中にジエンエラストマー内に混練によって取り込まれ、すなわち、少なくともこれらの様々な基本成分が、 $110^{\circ}\text{C}\sim 190^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $130^{\circ}\text{C}\sim 180^{\circ}\text{C}$ の最高温度が達成されるまで1つ又はそれよりも多くの工程で混合物内に導入されて熱機械的に練られるという特徴がある。

一例として、第1（非生産）相は、加硫システムを除いて補足的被覆剤又は処理剤及び様々な他の添加剤に必要な全ての基本成分が、従来の内部ミキサーのような好ましいミキサー内へ導入される間に、単一の熱機械的工程が達成される。この非生産相中の混練の全期間は、好ましくは1分～15分である。従って、得られた混合物を冷却後、加硫システムは、次にオープンミルのような一般的に外部ミキサー内に低温で取り込まれ、全組成物は、次に、例えば2分～15分の数分間混合される（生産相）。

【誤訳訂正18】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0065

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0065】

厳密な意味での加硫システムは、好ましくは、硫黄及び1次加硫促進剤、特にスルフェンアミド型の促進剤をベースとする。この基本加硫システムには、第1の非生産相中に及び／又は生産相中に、例えば、酸化亜鉛、ステアリン酸、グアニジン誘導体、その他のような様々な公知の2次促進剤又は加硫促進剤を加えることができる。硫黄は、例えば、本発明がタイヤトレッドに適用される時に、 $0.5\text{ phr}\sim 3.0\text{ phr}$ のような $0.5\text{ phr}\sim 10\text{ phr}$ 、より好ましくは、 $0.5\text{ phr}\sim 5.0\text{ phr}$ の好ましい量で用いられる。1次加硫促進剤は、本発明が特にタイヤトレッドに適用される時に、 $0.5\text{ phr}\sim 10\text{ phr}$ 、より好ましくは、 $0.5\text{ phr}\sim 5.0\text{ phr}$ の好ましい量で用いられる。

本発明は、「未硬化」状態（すなわち、硬化前）及び「硬化」又は加硫状態（すなわち、架橋又は加硫後）の両方の上述のゴム組成物に関することは言うまでもない。

本発明による組成物は、単独で又はタイヤ製造に使用可能なあらゆる他のゴム組成物との混合で使うことができる。

【誤訳訂正19】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0074

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0074】

III-2. 組成物の調製

以下で試験する組成物は、次のように調製される：すなわち、ジエンエラストマー（又は、適用可能な場合にはジエンエラストマーの混合物）が、 $70\%\sim 75\%$ まで満たされた内部ミキサー内に導入され、その初期タンク温度は、約 90°C であり；次に、例えば、1分の程度の適切な混練時間後に、加硫システムを除いて充填剤及び関連カップリング剤を含む全ての他の成分が加えられる。約12分の持続時間の熱機械的仕事が、次に、約 160°C の気温の低下が得られるまで 70 rpm の平均ブレード速度で実施される。

【誤訳訂正20】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0078

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0078】

対照組成物 C-1 のために選択された H D シリカ（充填剤 A）は、公知の方法で通常低エネルギー組成物の乗用車タイヤトレッドを補強するために用いる超高補強機能（ロディアからの「Z e o s i l」タイプ「1 1 6 5 M P」）を有するタイヤ等級シリカである。

これらの様々な組成物では、T E S P T カップリング剤は、対照組成物 C-1 のシリカに対して用いる充填剤の密度及び B E T 表面積の差に鑑みて、表面被覆の実質的に当量で導入された。